

EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 2001097897
PUBLICATION DATE : 10-04-01

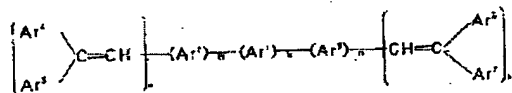
APPLICATION DATE : 30-09-99
APPLICATION NUMBER : 11277955

APPLICANT : IDEMITSU KOSAN CO LTD;

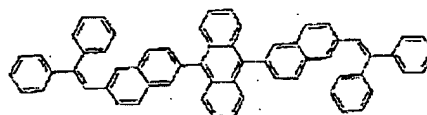
INVENTOR : HOSOKAWA CHISHIO;

INT.CL. : C07C 13/567 C07C 13/573 C09K 11/06
H05B 33/14

TITLE : ORGANIC COMPOUND AND ORGANIC
ELECTROLUMINESCENT ELEMENT
USING THE SAME



... (1)



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain both a new organic compound capable of exhibiting a high luminous efficacy in the case of using the compound as a constituent material for an organic electroluminescent element (organic EL element) and the organic EL element using the compound.

SOLUTION: This organic compound is represented by formula I [Ar1 is a bifunctional group composed of a 6-30C aromatic ring which may contain a substituent or a 4-30C bifunctional heterocyclic group containing at least one kind of hetero atom selected from O, N, S and Si (when both (s) and (t) are 0 and (k) is 1, Ar1 is not 9,10-anthrylene); Ar1 and Ar2 are each independently a 6-30C arylene group which may contain a substituent or a 4-30C bifunctional heterocyclic group containing at least one kind of hetero atom selected from O, N, S and Si (when (s) and (t) are 0, Ar2 and Ar3 positioned at the end of the compound are each a corresponding monofunctional aromatic group or heterocyclic group), Ar4 to Ar7 are each independently a 6-20C aryl group which may contain a substituent or a 4-30C monofunctional heterocyclic group containing at least one kind of hetero atom selected from O, N, S and Si; (k) is 1 or 2; (m) and (n) are each 1 or 2; (s) and (t) are each 0 or 1], to be concrete, an organic compound of the formula. The organic EL element has at least an organic luminous layer nipped between a pair of electrodes and contains the organic compound.

COPYRIGHT: (C)2001,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-97897

(P2001-97897A)

(43) 公開日 平成13年4月10日 (2001.4.10)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テームト* (参考)
C 0 7 C 13/567		C 0 7 C 13/567	3 K 0 0 7
13/573		13/573	4 H 0 0 6
C 0 9 K 11/06	6 1 0	C 0 9 K 11/06	6 1 0
	6 3 5		6 3 5
	6 4 0		6 4 0

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 23 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平11-277955

(22) 出願日 平成11年9月30日 (1999.9.30)

(71) 出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(72) 発明者 池田 秀嗣

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72) 発明者 舟橋 正和

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72) 発明者 東 久洋

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72) 発明者 細川 地潮

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(74) 代理人 100081765

弁理士 東平 正道

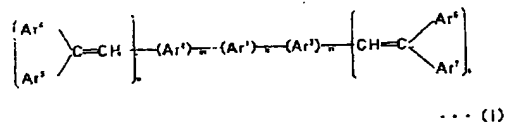
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

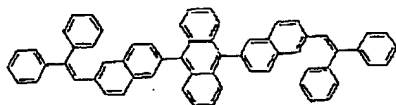
(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 有機エレクトロルミネッセンス素子 (有機EL素子) の構成材料として用いた場合に高い発光効率を発揮しうる新規な有機化合物、及びこのものを用いた有機EL素子を提供すること。

【解決手段】 一般式 (I)



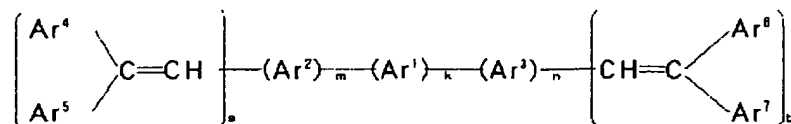
具体的には、例えば



で表される有機化合物、及び一对の電極間に挟持された有機発光層を少なくとも有し、かつ前記有機化合物を含む有機EL素子である。

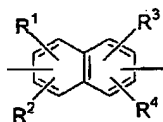
【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式 (I)



〔式中、Ar¹は置換基を有していてもよい炭素数6～30の芳香族環からなる二価の基又はO、N、S及びSiの中から選ばれた少なくとも一種のヘテロ原子を含む炭素数4～30の二価の複素環式基（但し、s、tがともに0でkが1の場合はAr¹は9、10-アントリレンではない）、Ar²及びAr³は、それぞれ独立に置換基を有していてもよい炭素数6～30のアリーレン基又はO、N、S及びSiの中から選ばれた少なくとも一種のヘテロ原子を含む炭素数4～30の二価の複素環式基（但し、s、tが0の場合は、化合物の末端に位置するAr²、Ar³は対応する一価の芳香族基又は複素環式基）、Ar⁴～Ar⁷は、それぞれ独立に置換基を有していてもよい炭素数6～20のアリール基又はO、N、S及びSiの中から選ばれる少なくとも一種のヘテロ原子を含む炭素数4～30の一価の複素環式基を示し、kは1、2又は3、m及びnはそれぞれ1又は2、s及びtはそれぞれ0又は1を示す。但し、Ar²とAr³のうちの少なくとも1つは、下記の式

【化2】



〔式中、R¹～R⁴はそれぞれ独立に水素原子、炭素数1～8のアルキル基、炭素数1～8のアルコキシ基、炭素数1～12のアリール基であり、R¹、R²、R³及びR⁴はそれぞれ互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。〕で表されるナフチレン基（但し、s、tが0の場合は、化合物の末端に位置するAr²、Ar³は対応する一価のナフチル基）である。〕で表される有機化合物。

【請求項2】 一対の電極間に挟持された有機発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、請求項1に記載の有機化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 請求項1に記載の有機化合物を主として発光帯域に含有させてなる請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 請求項1に記載の有機化合物を有機発光層に含有させてなる請求項3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 有機発光層に、さらに再結合サイト形成

【化1】

... (I)

物質を含有させてなる請求項2又は4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】 再結合サイト形成物質が、蛍光量子収率0.3～1.0の蛍光物質である請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】 再結合サイト形成物質が、スチリルアミン系化合物、キナクリドン誘導体、ルブレン誘導体、クマリン誘導体及びピラン誘導体の中から選ばれた少なくとも一種である請求項5又は6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項8】 請求項1に記載の有機化合物を再結合サイト形成物質として含有する請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新規な有機化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、エレクトロルミネッセンスを「EL」と略記する。）に関する。さらに詳しくは、本発明は、有機EL素子の構成材料として有用な有機化合物、及びこのものを用いてなる優れた発光効率を有する有機EL素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】電界発光を利用した有機EL素子は、自己発光であることから視認性が高く、また完全固体素子であるために耐衝撃性に優れているという特徴を有している。したがって、薄膜ディスプレイ素子や液晶ディスプレイのバックライト、平面光源などの分野に使用されている。現在、実用化されているエレクトロルミネッセンス素子は、分散型EL素子であるが、この分散型EL素子は、数十ボルト、10キロヘルツ以上の交流電圧を必要とするため、その駆動回路が複雑になっている。

【0003】このようなことから、駆動電圧を10ボルト程度まで低下させることができ、かつ高輝度に発光することのできる有機EL素子が、近年盛んに研究されている。例えば有機薄膜EL素子として、透明電極/正孔注入層/発光層/背面電極の積層型構造のものが提案されており（Appl. Phys. Lett., 第51巻, 第913～915ページ（1987年）および特開昭63-264629号公報）、これらは、ここで用いられている正孔注入層により、効率よく正孔を発光層内に注入することができるようになされている。このような有機EL素子に

において用いられる発光層は、単層であってもよいのであるが、単層では電子輸送性と正孔輸送性とのバランスが良くないことから、多層に積層することにより、性能の向上が図られていた。

【0004】ところで、このように積層構造に形成するためには、その製造工程が煩雑になり所要時間も長くなるほか、各層に薄膜性が要求されるなどの制限が多いという問題がある。さらに、近年においては、情報機器などのコンパクト化や携帯型への移行の要請が高まり、これらの駆動電圧のさらなる低電圧化の要望が増大している。そこで、このような軽量化や駆動電圧の低電圧化のために、発光材料や正孔輸送材料などの開発が試みられている。アントラセンは発光材料として知られているが、均一な薄膜の形成が困難であることから、種々の置換基を導入することが試みられている。例えば、有機EL素子の発光材料として、縮合多環芳香族炭化水素化合物が提案されている（特開平4-178488号公報、同6-228544号公報、同6-228545号公報、同6-228546号公報、同6-228547号公報、同6-228548号公報、同6-228549号公報、同8-311442号公報及び同8-1296

9号公報）。しかしながら、これらの化合物を用いたものは、いずれも発光効率が充分ではないという問題がある。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、このような状況下で、有機EL素子の構成材料として用いた場合に高い発光効率を発揮しうる新規な化合物、及びこれを用いた有機EL素子を提供することを目的とするものである。

【0006】

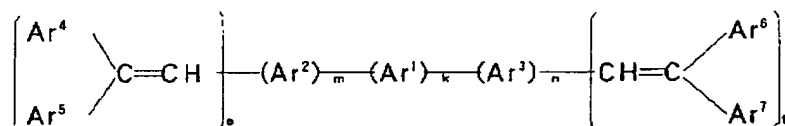
【課題を解決するための手段】本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、特定の構造を有する有機化合物によりその目的を達成しうることを見出し、かかる知見に基づいて本発明を完成したものである。

【0007】すなわち、本発明の概要は以下の通りである。

【0008】〔1〕 一般式（1）

【0009】

〔化3〕

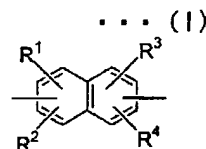


【0010】〔式中、Ar¹は置換基を有していてもよい炭素数6～30の芳香族環からなる二価の基又はO、N、S及びSiの中から選ばれた少なくとも一種のヘテロ原子を含む炭素数4～30の二価の複素環式基（但し、s、tがともに0でkが1の場合はAr¹は9、10-アントリレンではない）、Ar²及びAr³は、それぞれ独立に置換基を有していてもよい炭素数6～30のアリーレン基又はO、N、S及びSiの中から選ばれた少なくとも一種のヘテロ原子を含む炭素数4～30の二価の複素環式基（但し、s、tが0の場合は、化合物の末端に位置するAr²、Ar³は対応する一価の芳香族基又は複素環式基）、Ar⁴～Ar⁷は、それぞれ独立に置換基を有していてもよい炭素数6～20のアリール基又はO、N、S及びSiの中から選ばれる少なくとも一種のヘテロ原子を含む炭素数4～30の一価の複素環式基を示し、kは1、2又は3、m及びnはそれぞれ1又は2、s及びtはそれぞれ0又は1を示す。

【0011】但し、Ar²とAr³のうちの少なくとも1つは、下記の式

【0012】

〔化4〕



【0013】〔式中、R¹～R⁴はそれぞれ独立に水素原子、炭素数1～8のアルキル基、炭素数1～8のアルコキシ基、炭素数1～12のアリール基であり、R¹、R²、R³及びR⁴はそれぞれ互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。〕で表されるナフチレン基（但し、s、tが0の場合は、化合物の末端に位置するAr²、Ar³は対応する一価のナフチル基）である。〕で表される有機化合物。

【0014】〔2〕 一对の電極間に挟持された有機発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記〔1〕に記載の有機化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔3〕 前記〔1〕に記載の有機化合物を主として発光帯域に含有させてなる前記〔2〕に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔4〕 前記〔1〕に記載の有機化合物を有機発光層に含有させてなる前記〔3〕に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔5〕 有機発光層に、さらに再結合サイト形成物質を含有させてなる前記〔2〕又は〔4〕に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔6〕 再結合サイト形成物質が、蛍光量子収率0.3～1.0の蛍光物質である前記〔5〕に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0015】〔7〕 再結合サイト形成物質が、ステリルアミン系化合物、キナクリドン誘導体、ルブレン誘導体、クマリン誘導体及びピラン誘導体の中から選ばれた少なくとも一種である前記〔5〕又は〔6〕に記載の有機

機エレクトロルミネッセンス素子。

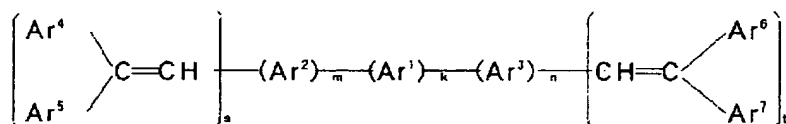
【0016】〔8〕 請求項1に記載の有機化合物を再結合サイト形成物質として含有する前記〔2〕に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0017】

【発明の実施の形態】本発明の有機化合物は、一般式（I）

【0018】

【化5】



【0019】で表される構造を有する化合物である。そして、この一般式（I）において、Ar¹は置換基を有していてもよい炭素数6～30の芳香族環からなる二価の基又はO、N、S及びSiの中から選ばれた少なくとも一種のヘテロ原子を含む炭素数4～30の二価の複素環式基を示す。

【0020】ここで炭素数6～30の芳香族環からなる二価の基の例としては、フェニレン、ビフェニレン、ターフェニレン、トリフェニレン、クリセン、ナフタセン、ピセン、ペリレン、ペンタセン、コロネン、ルビセン、アントラセン、ベンゾ〔a〕アントラセン、ベンゾ〔a〕ピレン、テトラフェニレン、ビスアントラセンなどの芳香族化合物の二価の残基が挙げられる。一方、炭素数4～30の二価の複素環式基としては、例えばフラン、チオフェン、ピロール、2-ヒドロキシピロール、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、1-ベンゾチオフェン、2-ベンゾチオフェン、インドール、イソインドール、インドリジン、カルバゾール、2-ヒドロキシピラン、2-ヒドロキシクロメン、1-ヒドロキシ-2-ベンゾピラン、キサントレン、4-ヒドロキシチオピラン、ピリジン、キノリン、イソキノリン、4-ヒドロキシキノリン、フェナンスリジン、アクリジン、オキサゾール、イソオキサゾール、チアゾール、イソチアゾール、フラザン、イミダゾール、ピラゾール、ベンゾイミダゾール、1-ヒドロキシイミダゾール、1,8-ナフチリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、キノキサリン、キナズリン、シノリン、フタラジン、ピュリン、テリジン、ペリミジン、1,10-フェナンスロリン、チアンスレン、フェノキサチン、フェノキサジン、フェノチアジン、フェナジン、フェナサジン、シラシクロベンタジエン、シラベンゼンなどの複素環式化合物の二価の残基が挙げられる。

【0021】なお、kは1、2又は3を表し、kが2以上の場合、これらAr¹は同一でも異なっているもよ

い。

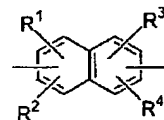
【0022】但し、一般式（1）におけるs、tがともに0であり、kが1の場合はAr¹は9、10-アントリレンになることはない。

【0023】次に、前記一般式（I）において、Ar²及びAr³は、それぞれ独立に置換基を有していてもよい炭素数6～30のアリーレン基又はO、N、S及びSiの中から選ばれた少なくとも一種のヘテロ原子を含む炭素数4～30の二価の複素環式基を示す。ここで、炭素数6～30のアリーレン基としては、例えばフェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラニレン基、ターフェニレン基などが挙げられ、一方、炭素数4～30の二価の複素環式基としては、例えば上記Ar¹の説明で例示したものと同一ものが挙げられる。

【0024】但し、本発明においては一般式（I）のAr²とAr³のうちの少なくとも1つは、下記の式

【0025】

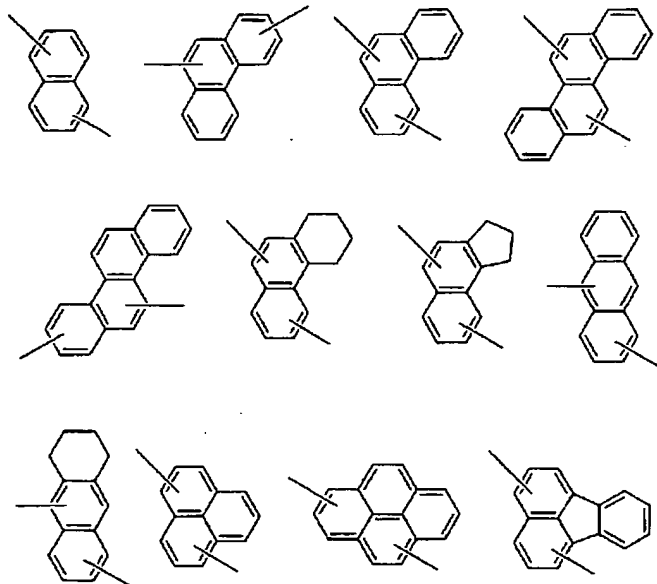
【化6】



【0026】で表されるナフチレン基であることが必要である。この式におけるR¹～R⁴としては、それぞれ水素原子、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-オクチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基などの炭素数1～8のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、tert-ブトキシ基、各種ペンチルオキシ基、各種ヘキシルオキシ基、各種オクチルオキシ基などの炭素数1～8のアルコキシ基、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェ

ニル基、スチリル基などの炭素数6～12のアリール基が挙げられる。

【0027】この置換基 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 はそれぞれ互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成



【0029】なお、 Ar^2 と Ar^3 は、たがいに同一であっても、異なってもよく、一般式(I)のs、tが0の場合は、一般式(I)の化合物の末端に位置する Ar^2 、 Ar^3 は、上述のアルキレン基などに対応する一価のアルキル基又は複素環式基である。

【0030】また、一般式(I)におけるm及びnは、それぞれ1又は2であり、mが2の場合、二つの Ar^2 は同一でも異なってもよく、nが2の場合、二つの Ar^3 は同一でも異なってもよい。

【0031】続いて、前記一般式(I)における Ar^4 ～ Ar^7 は、それぞれ置換基を有していてもよい炭素数6～20のアリール基又はO、N、S及びSiの中から選ばれた少なくとも一種のヘテロ原子を含む炭素数4～30の一価の複素環式基を示す。ここで、炭素数6～20のアリール基の例としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、ターフェニル基、フェナンスリル基、ピレニル基、ジフェニルナフチル基、ジフェニルアントラニル基、スチリル基、スチリルフェニル基などが挙げられるが、これらの中でも、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基が好ましい。一方、炭素数4～30の一価の複素環式基の例としては、フラン、チオフェン、ピロール、2-ヒドロキシピロール、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、1-ベンゾチオフェン、2-ベンゾチオフェン、インドール、イソインドール、インドリジン、カルバゾール、2-ヒドロキシピラン、2-ヒドロキシクロメン、1-ヒドロキシ-2-ベンゾピラン、キサテン、4-ヒドロキシチオピラン、ピリジン、キノリン、イソキノリン、

してもよい。従って、ナフチレン基の代表例としては次のものが挙げられる。

【0028】

【化7】

4-ヒドロキシキノリジン、フェナンスリジン、アクリジン、オキサゾール、イソオキサゾール、チアゾール、イソチアゾール、フラザン、イミダゾール、ピラゾール、ベンゾイミダゾール、1-ヒドロキシイミダゾール、1,8-ナフチリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、キナキサリンキナゾリン、シノリン、フタラジン、ピュリン、テリジン、ペリミジン、1,10-フェナンスロリン、チアンスレン、フェノキサチン、フェノキサジン、フェノチアジン、フェナジン、フェナサジン、シラシクロペンタジエン、シラベンゼンなどの複素環式化合物の一価の残基が挙げられる。この Ar^4 ～ Ar^7 は、たがいに同一であってもよく、異なってもよい。

【0032】そして、これら Ar^1 ～ Ar^7 が有していてもよい置換基としては、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数5～18のアリールオキシ基、炭素数7～18のアラルキルオキシ基、炭素数5～16のアリール基で置換されたアミノ基、ニトロ基、シアノ基、炭素数1～6のエステル基、ハロゲン原子などである。

【0033】この炭素数1～6のアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、各種ペンチル基、各種ヘキシル基などが挙げられ、また、炭素数1～6のアルコキシ基の例としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、tert-ブトキシ基、各種ペンチルオキ

シ基、各種ヘキシルオキシ基などが挙げられる。

【0034】また、炭素数5～18のアリールオキシ基の例としては、フェノキシ基、トリルオキシ基、ナフチルオキシ基などが、炭素数7～18のアラルキルオキシ基の例としては、ベンジルオキシ基、フェネチルオキシ基、ナフチルメトキシ基などが、炭素数5～16のアリール基で置換されたアミノ基の例としては、ジフェニルアミノ基、ジナフチルアミノ基、ナフチルフェニルアミノ基などが、炭素数1～6のエステル基の例としては、

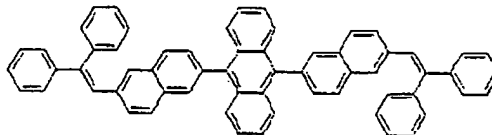
メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、プロポキシカルボニル基、イソプロポキシカルボニル基などが、ハロゲン原子の例としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子などが挙げられる。

【0035】前記一般式(I)で表される有機化合物としては、例えば

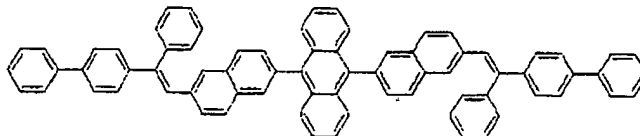
【0036】

【化8】

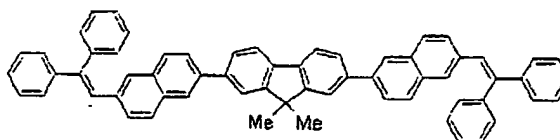
(A-1)



(A-2)



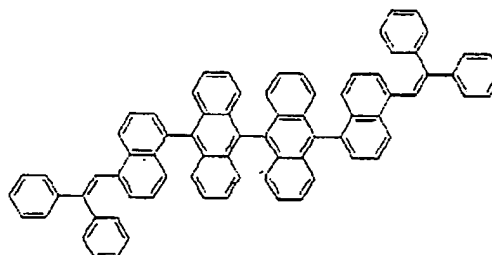
(A-3)



(A-4)



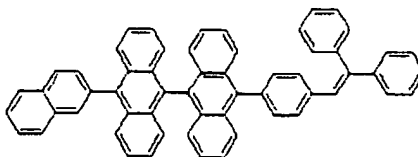
(A-5)



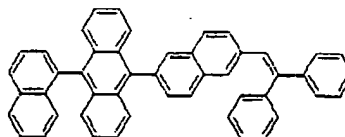
【0037】

【化9】

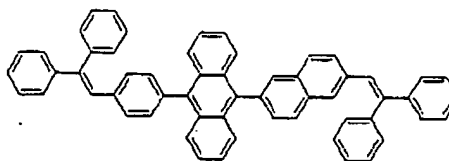
(A-6)



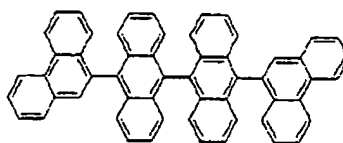
(A-7)



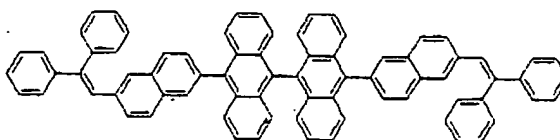
(A-8)



(A-9)



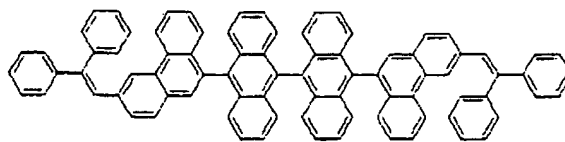
(A-10)



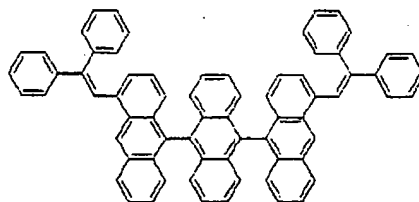
【0038】

【化10】

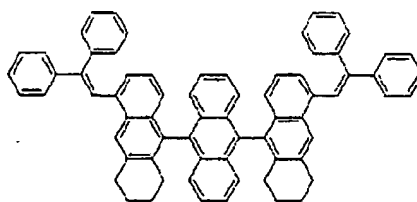
(A-11)



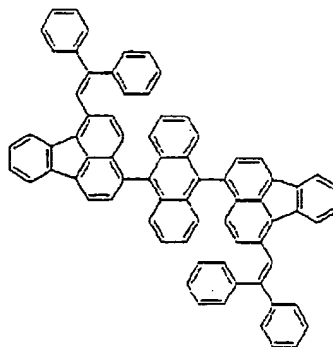
(A-12)



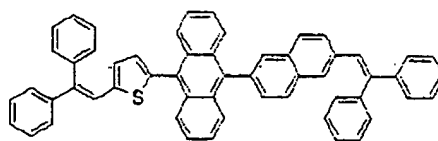
(A-13)



(A-14)



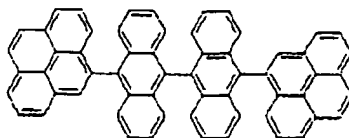
(A-15)



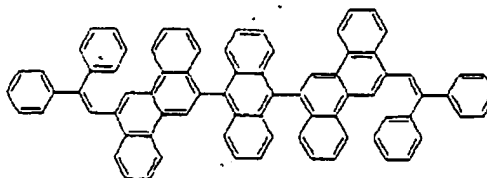
【0039】

【化11】

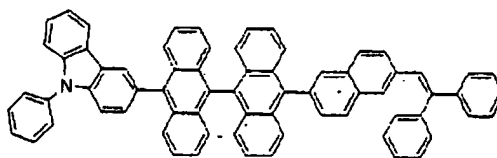
(A-16)



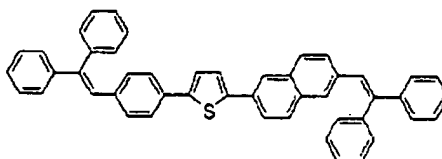
(A-17)



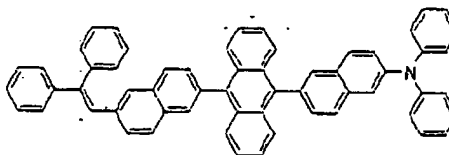
(A-18)



(A-19)



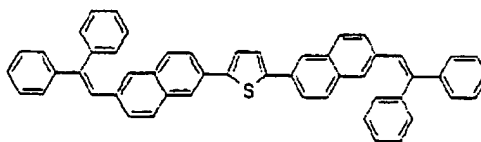
(A-20)



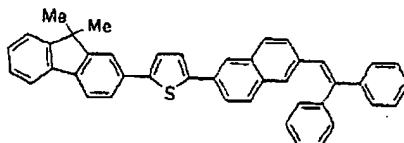
【0040】

【化12】

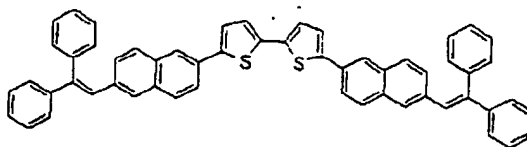
(A-21)



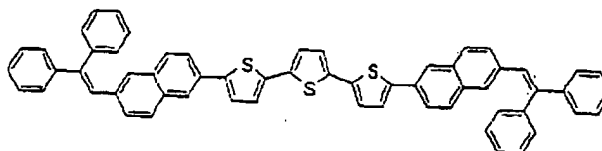
(A-22)



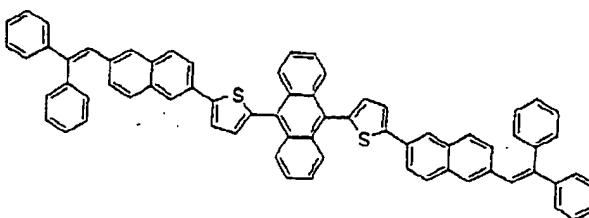
(A-23)



(A-24)



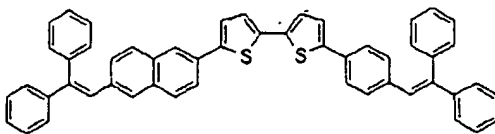
(A-25)



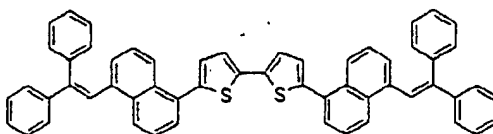
【0041】

【化13】

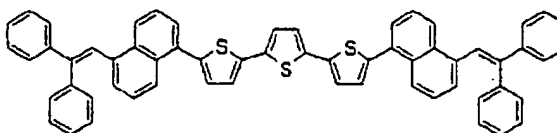
(A-26)



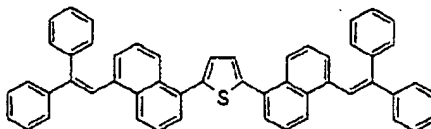
(A-27)



(A-28)



(A-29)



【0042】で表される化合物などを挙げることができる。

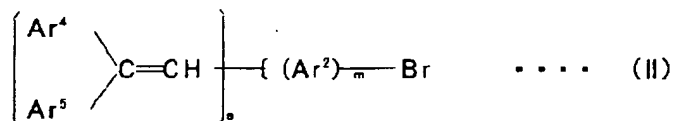
【0043】本発明の一般式(I)で表される有機化合物の製造方法としては特に制限はなく、様々な方法を用いることができるが、例えば以下に示す方法により、所望のポリアリーレン誘導体を効率よく製造することがで

きる。

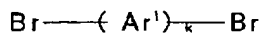
【0044】一般式(I)において、 $Ar^2 = Ar^3$, $Ar^4 = Ar^5 = Ar^6 = Ar^7$ 及び $m = n$ の場合の例について説明すると、一般式(II)

【0045】

【化14】



【0046】(式中、 Ar^2 , Ar^4 , Ar^5 及び m , s は前記と同じである。)で表されるハロゲン化合物をボロン酸化合物に変換したのち、一般式(III)



【0048】(式中、 Ar^1 及び k は前記と同じである。)で表されるジブロモ化合物をカップリングさせることにより、一般式(I-a)

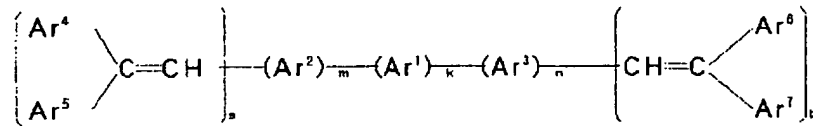
【0047】

【化15】



【0049】

【化16】



【0050】(式中、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^7$ k, m, n, s 及び t は前記と同じである。)で表される有機化合物が効率よく得られる。

【0051】また、前記一般式(II)で表されるハロゲン化合物をアルキルリチウム試薬などと反応させることにより、リチオ化し、次いで $(\text{Ar}^1)_k$ に対応するキノンと反応させることによりジオールとしたのち、これをヨウ化水素酸やヨウ化カリウムなどで芳香族化することによっても、所望の有機化合物が効率よく得られる。

【0052】次に、本発明の有機EL素子は、一對の電極間に挟持された有機発光層を少なくとも有する素子であって、この素子としては、発光帯域、特に有機発光層に前記有機化合物を含有させたものが好適である。

【0053】この有機EL素子の代表的な素子構成としては、

- ①陽極／発光層／陰極
- ②陽極／正孔注入層／発光層／陰極
- ③陽極／発光層／電子注入層／陰極
- ④陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極
- ⑤陽極／有機半導体層／発光層／陰極
- ⑥陽極／有機半導体層／電子障壁層／発光層／陰極
- ⑦陽極／有機半導体層／発光層／付着改善層／陰極
- ⑧陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極

などを挙げることができるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0054】これら各種の素子構成の中では、上記⑧の構成のものが好ましく用いられる。そして、前記一般式(I)で表される有機化合物は、これらの構成要素の中の主として発光帯域、殊に発光層に含有させたものが好適に用いられる。この発光層への上記有機化合物の含有割合は、発光層全体に対して30～100重量%であるものが好適である。

【0055】この有機EL素子は、通常透光性の基板上に作製する。この透光性基板は有機EL素子を支持する基板であり、その透光性については、400～700nmの可視領域の光の透過率が50%以上であるものが望ましく、さらに平滑な基板を用いるのが好ましい。

【0056】このような透光性基板としては、例えば、ガラス板、合成樹脂板などが好適に用いられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英などで成形された板が挙げられる。また、合成樹脂板

・・・ (I-a)

としては、ポリカーボネート樹脂、アクリル樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリエーテルサルファイド樹脂、ポリサルフォン樹脂などの板が挙げられる。

【0057】次に、上記の陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物又はこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Auなどの金属、CuI、ITO(インジウムチンオキサイド)、 SnO_2 、ZnO、In-Zn-Oなどの導電性材料が挙げられる。この陽極を形成するには、これらの電極物質を、蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることができる。この陽極は、上記発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きくなるような特性を有していることが望ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百 Ω/\square 以下のものが好ましい。さらに、陽極の膜厚は、材料にもよるが通常10nm～1 μm 、好ましくは10～200nmの範囲で選択される。

【0058】そして、本発明の有機EL素子の発光層としては、以下の機能を併せ持つものが好適である。

【0059】①注入機能：電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能

②輸送機能：注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能

③発光機能：電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能

ただし、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさには、違いがあってもよく、また正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。前記一般式(I)で表されるジスチルアリーレン誘導体は、上記の3つの条件を満たしており、これを主とする発光層を形成することができる。

【0060】また、この有機EL素子の発光層の構成材料の一部として、再結合サイト形成物質を用いることができる。この再結合サイト形成物質は、両極から注入された電子と正孔がそれぞれ再結合する場所を積極的に提供する物質、あるいは電子と正孔の再結合自体は生じないが再結合エネルギーが伝搬されて光を発する場所を提供する物質である。したがって、この再結合サイト形成物質を加えることによって、前記ポリアリーレン誘導体の単独使用の場合よりも、電子と正孔とを集中的に発光層の中央付近で再結合させて、発光層における発光輝度

をさらに高めることができる。

【0061】このようなことから、本発明の有機EL素子の発光層の構成材料に用いる再結合サイト形成物質としては、その蛍光量子収率が高いものが好ましく、ことにその値が0.3～1.0であるものが好適である。このような再結合サイト形成物質としては、スチリルアミン系化合物、キナクリドン誘導体、ルブレン誘導体、クマリン誘導体及びピラン誘導体の中から選ばれた一種あるいは二種以上の混合物が挙げられる。また、この再結合サイト形成物質として、共役系高分子化合物を用いることができ、ことにポリアリーレンビニレン誘導体や、炭素数1～50のアルキル基置換あるいはアルコキシ基置換のポリアリーレンやビニレン誘導体などが挙げられる。

【0062】また、これら再結合サイト形成物質は、発光層における発色性を考慮して選択することもことが望ましい。例えば、青色の発色を所望する場合には、ペリレンや、アミノ置換ジスチリルアリーレン誘導体などを使用することが好ましい。そして、緑色の発色を所望する場合には、キナクリドン誘導体あるいはクマリン誘導体などを使用することが好ましい。また、黄色の発色を所望する場合には、ルブレン誘導体などを使用することが好ましい。さらに、橙色や赤橙色を所望する場合には、ジシアノメチルピラン誘導体などを使用することが好ましい。

【0063】また、本発明の前記一般式(Ⅰ)で表される有機化合物を、再結合サイト形成物質として用いることも、好ましい形態である。特に(A-21)～(A-29)の中から選ばれる化合物である場合に、高品質の有機EL素子が得られ、発光色としては緑色から黄色までの領域を実現することができる。

【0064】本発明の有機EL素子においては、前記再結合サイト形成物質の配合割合は、発光層の発光輝度や発色性を考慮して定めるのであるが、具体的には、前記有機化合物100重量部に対して、0.1～20重量部の範囲内の値とすることが好ましい。この再結合サイト形成物質の配合量が0.1重量部未満であると、発光輝度が低下する傾向があり、一方、20重量部を超えると、耐久性が低下する傾向がある。したがって、有機EL素子における発光輝度と耐久性とのバランスをよりよく維持するためには、この配合割合を、前記有機化合物

100重量部に対して、0.5～20重量部とするのが好ましく、さらに好ましくはこの値を1.0～10重量部とするのがよい。

【0065】この有機EL素子の有機発光層を形成する材料は、上記のほか、所望の色調によって、次のような化合物が用いられる。例えば、紫外域から紫色の発光を得る場合には、一般式(Ⅳ)で表される化合物が好適に用いられる。

【0066】

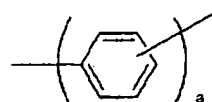
【化17】



【0067】(式中、Xは一般式

【0068】

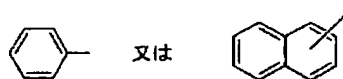
【化18】



【0069】(aは2～5の整数を示す。)で表される二価の基を示し、Yは

【0070】

【化19】

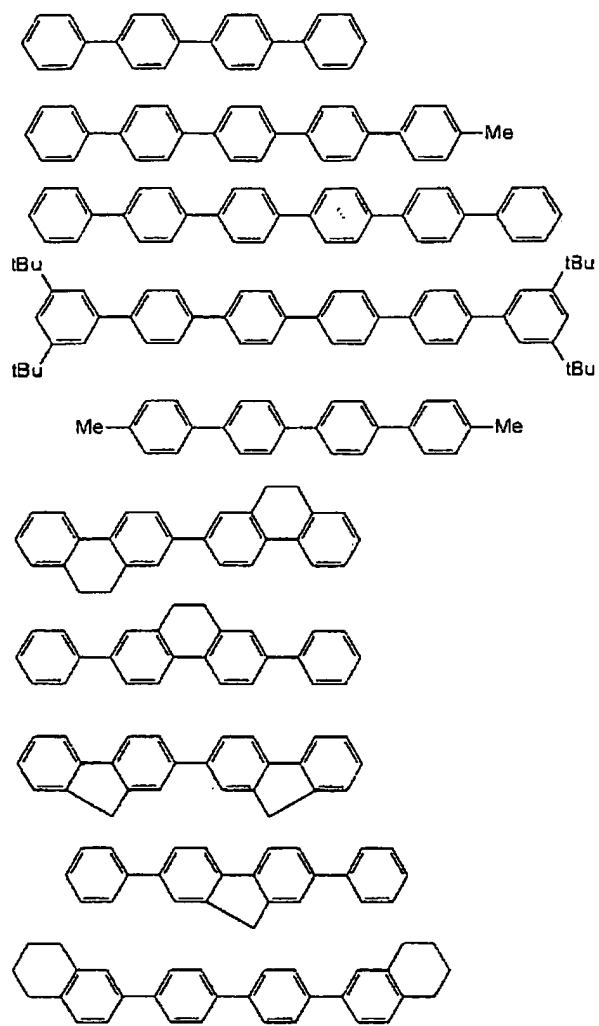


【0071】で表されるアリール基を示す。

【0072】この一般式(Ⅳ)で表される化合物におけるフェニル基、フェニレン基、ナフチル基には、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアルコキシ基、水酸基、スルホニル基、カルボニル基、アミノ基、ジメチルアミノ基またはジフェニルアミノ基等の単数または複数の置換基が導入されていてもよい。また、これら置換基が複数ある場合には、それらが互いに結合し、飽和5員環あるいは6員環を形成していてもよい。さらに、この化合物の形態については、フェニル基、フェニレン基、ナフチル基にパラ位で結合したものが、結合性が良く、かつ平滑な蒸着膜が形成し易いことから好ましい。上記一般式(Ⅳ)で表される化合物の具体例を示せば、下記のとおりである。

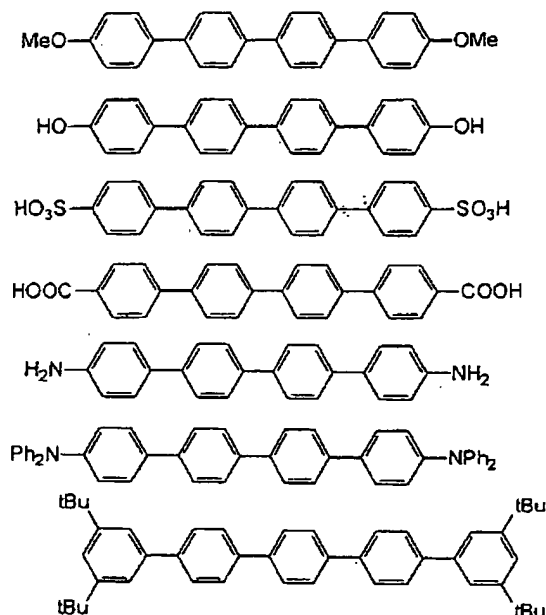
【0073】

【化20】



【0074】

【化21】



【0075】これら化合物の中では、特にp-クォーターフェニル誘導体、p-クインフェニル誘導体が好ましい。

【0076】また、青色から緑色の発光を得るためには、例えばベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、スチリルベンゼン系化合物を用いることができる。これら化合物の具体例としては、例えば特開昭59-194393号公報に開示されている化合物を挙げることができる。さらに他の有用な化合物は、ケミストリー・オブ・シンセティック・ダイズ(1971)628~637頁および640頁に列挙されている。

【0077】前記キレート化オキシノイド化合物としては、例えば、特開昭63-295695号公報に開示されている化合物を用いることができる。その代表例としては、トリス(8-キノリノール)アルミニウム等の8-ヒドロキシキノリン系金属錯体や、ジリチウムエビトリジオン等が好適な化合物として挙げることができる。

【0078】また、前記スチリルベンゼン系化合物としては、例えば、欧州特許第0319881号明細書や欧州特許第0373582号明細書に開示されているものを用いることができる。そして、特開平2-252793号公報に開示されているジスチリルピラジン誘導体も、発光層の材料として用いることができる。このほか、欧州特許第0387715号明細書に開示されているポリフェニル系化合物も発光層の材料として用いることができる。

【0079】さらに、上述した蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物およびスチリルベンゼン系化合物

等以外に、例えば12-フタロペリノン(J. Appl. Phys., 第27巻, L713(1988年))、1,4-ジフェニル-1,3-ブタジエン、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン(以上Appl. Phys. Lett., 第56巻, L799(1990年))、ナフタルイミド誘導体(特開平2-305886号公報)、ペリレン誘導体(特開平2-189890号公報)、オキサジアゾール誘導体(特開平2-216791号公報、または第38回応用物理学関係連合講演会で浜田らによって開示されたオキサジアゾール誘導体)、アルダジン誘導体(特開平2-220393号公報)、ピラジン誘導体(特開平2-220394号公報)、シクロペンタジエン誘導体(特開平2-289675号公報)、ピロロピロール誘導体(特開平2-296891号公報)、スチリルアミン誘導体(Appl. Phys. Lett., 第56巻, L799(1990年))、クマリン系化合物(特開平2-191694号公報)、国際特許公報WO90/13148やAppl. Phys. Lett., vol 58, 18, P1982(1991)に記載されているような高分子化合物等も、発光層の材料として用いることができる。

【0080】本発明では特に発光層の材料として、芳香族ジメチリデン系化合物(欧州特許第0388768号明細書や特開平3-231970号公報に開示のもの)を用いることが好ましい。具体例としては、4,4'-ビス(2,2-ジメチル-5-ヒドロキシ-1-フェニルエニル)ビフェニル、4,4'-ビス(2,2-ジフェニル-5-ヒドロキシ-1-フェニルエニル)ビフェニル等、およびそれらの誘導体を挙げることができる。

【0081】また、特開平5-258862号公報等に記載されている一般式 $(Rs-Q)_2-A1-O-L$

〔式中、Lはフェニル部分を含んでなる炭素原子6～24個の炭化水素であり、O-Lはフェノレート配位子であり、Qは置換8-キノリノレート配位子を示し、Rsはアルミニウム原子に置換8-キノリノレート配位子が2個を上回り結合するのを立体的に妨害するように選ばれた8-キノリノレート環置換基を示す〕で表される化合物も挙げられる。具体的には、ビス(2-メチル-8-キノリノレート)(パラ-フェニルフェノレート)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノレート)(1-ナフトレート)アルミニウム(III)等が挙げられる。

【0082】このほか、特開平6-9953号公報等によるドーピングを用いた高効率の青色と緑色の混合発光を得る方法が挙げられる。この場合、ホストとしては、上記の発光材料、ドーパントとしては青色から緑色までの強い蛍光色素、例えばクマリン系あるいは上記のホストとして用いられているものと同様な蛍光色素を挙げることができる。具体的には、ホストとしてジスチルアリーレン骨格の発光材料、特に好ましくは4, 4'-ビス(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニル、ドーパントとしてはペリレン誘導体、特に好ましくは、例えばジスチルアリーレン誘導体を挙げることができる。

【0083】白色の発光を得る発光層としては特に制限はないが、下記のものを用いることができる。

①有機EL積層構造体の各層のエネルギー準位を規定し、トンネル注入を利用して発光させるもの(欧州特許第0390551号公報)。

②①と同じくトンネル注入を利用する素子で実施例として白色発光素子が記載されているもの(特開平3-230584号公報)。

③二層構造の発光層が記載されているもの(特開平2-220390号公報および特開平2-216790号公報)。

④発光層を複数に分割してそれぞれ発光波長の異なる材料で構成されたもの(特開平4-51491号公報)。

⑤青色発光体(蛍光ピーク380～480nm)と緑色発光体(480～580nm)とを積層させ、さらに赤色発光体を含有させた構成のもの(特開平6-207170号公報)。

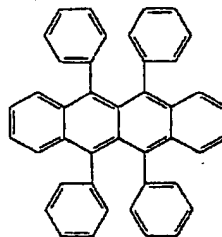
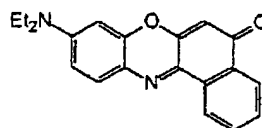
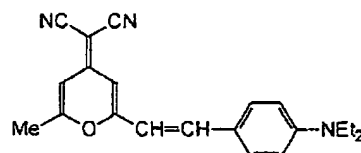
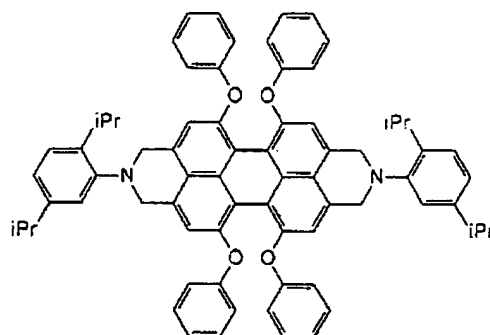
⑥青色発光層が青色蛍光色素を含有し、緑色発光層が赤色蛍光色素を含有した領域を有し、さらに緑色発光体を含有する構成のもの(特開平7-142169号公報)。

これらの中では、上記⑤の構成のものが特に好ましい。

【0084】さらに、赤色発光体としては、下記に示すものが好適に用いられる。

【0085】

【化22】



【0086】次に、上記材料を用いて発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態または液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

【0087】また特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

【0088】このようにして形成される発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、通常5nm～5μmの範囲が好ましい。この発光層は、上述した材料の1種または2種以上からなる一層で構成されてもよいし、また、前記発光層とは

別種の化合物からなる発光層を積層したものであってもよい。

【0089】次に、正孔注入・輸送層は、発光層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが通常5.5 eV以下と小さい。このような正孔注入・輸送層としてはより低い電界強度で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば $10^4 \sim 10^6$ V/cmの電界印加時に、少なくとも 10^{-6} cm²/V・秒であるものが好ましい。本発明のジスチルアリレン誘導体と混合して正孔注入・輸送層を形成する材料としては、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において正孔の電荷輸送材料として慣用されているものや、有機EL素子の正孔注入層に使用されている公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0090】このような正孔注入・輸送層の形成材料としては、具体的には、例えばトリアゾール誘導体（米国特許3,112,197号明細書等参照）、オキサジアゾール誘導体（米国特許3,189,447号明細書等参照）、イミダゾール誘導体（特公昭37-16096号公報等参照）、ボリアリールアルカン誘導体（米国特許3,615,402号明細書、同第3,820,989号明細書、同第3,542,544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照）、ピラゾリン誘導体およびピラズロン誘導体（米国特許第3,180,729号明細書、同第4,278,746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第3,615,404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照）、アリールアミン誘導体（米国特許第3,567,450号明細書、同第3,180,703号明細書、同第3,240,597号明細書、同第3,658,520号明細書、同第4,232,103号明細書、同第4,175,961号明細書、同第4,012,376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1,110,518号明細書等参照）、アミノ置換カルコン誘導体（米国特許第3,5

26,501号明細書等参照）、オキサゾール誘導体（米国特許第3,257,203号明細書等に開示のもの）、スチリルアントラセン誘導体（特開昭56-46234号公報等参照）、フルオレノン誘導体（特開昭54-110837号公報等参照）、ヒドラゾン誘導体（米国特許第3,717,462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照）、スチルベン誘導体（特開昭61-210363号公報、同第61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93455号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照）、シラザン誘導体（米国特許第4,950,950号明細書）、ポリシラン系（特開平2-204996号公報）、アニリン系共重合体（特開平2-282263号公報）、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー（特にチオフェンオリゴマー）等を挙げることができる。

【0091】正孔注入・輸送層の材料としては上記のものを使用することができるが、ボルフィリン化合物（特開昭63-2956965号公報等に開示のもの）、芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物（米国特許第4,127,412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報等参照）、芳香族第三級アミン化合物を用いることもできる。

【0092】また米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば4,4'-ビス（N-（1-ナフチル）-N-フェニルアミノ）ビフェニル、また特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4"-トリリス（N-（3-メチルフェニル）-N-フェニルアミノ）トリフェニルアミン等を挙げることができる。さらに、発光層の材料として示した前述の芳香族ジメチリدين系化合物の他、p型Si、p型SiC等の無機化合物も正孔注入・輸送層の材料として使用することができる。

【0093】そして、この正孔注入・輸送層を形成するには、上述の化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化

すればよい。この場合、正孔注入・輸送層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm～5μmである。この正孔注入・輸送層は、正孔輸送帯域に本発明の芳香族炭化水素化合物を含有していれば、上述した材料の1種または2種以上からなる一層で構成されてもよいし、また、前記正孔注入・輸送層とは別種の化合物からなる正孔注入・輸送層を積層したものであってもよい。

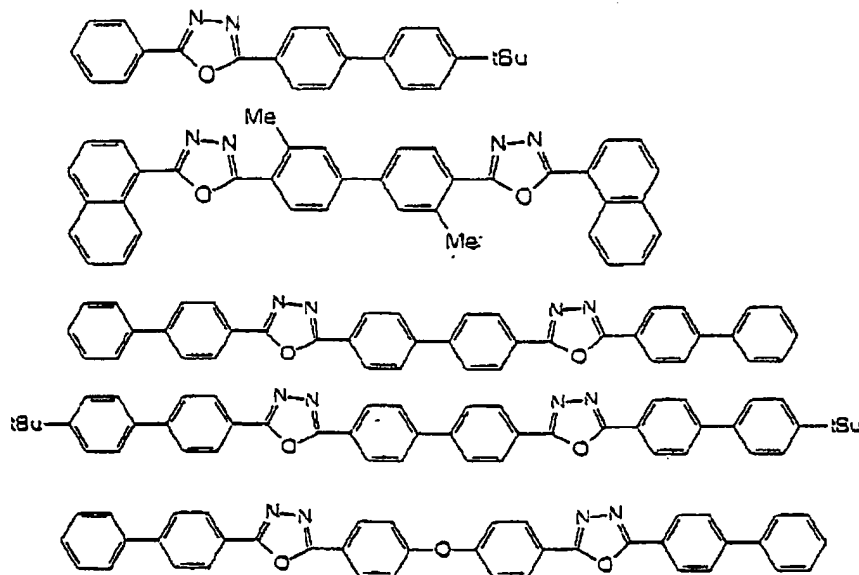
【0094】また、有機半導体層は、発光層への正孔注入または電子注入を助ける層であって、 10^{-10} S/cm以上の導電率を有するものが好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや特開平8-193191号公報に記載の含アリールアミンオリゴマー等の導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマー等の導電性デンドリマー等を用いることができる。

【0095】次に、電子注入層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きく、また付着改善層は、この電子注入層の中で特に陰極との付着が良い材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体が好適である。上記8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシン（一般に8-キノリノールまたは8-ヒドロキシキノリン）のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物、例えばトリス（8-キノリノール）アルミニウムを電子注入材料として用いることができる。

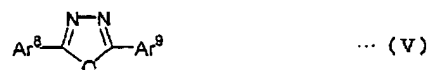
【0096】そして、オキサジアゾール誘導体としては、下記一般式（V）～（VII）

【0097】

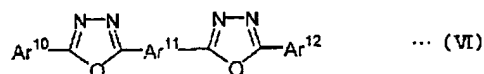
【化23】



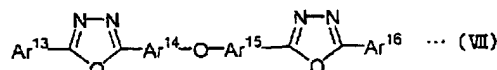
【0102】次に、陰極としては、仕事関数の小さい（4eV以下）金属、合金、電気伝導性化合物及びこれ



… (V)



… (VI)



… (VII)

【0098】（式中、 Ar^3 、 Ar^9 、 Ar^{10} 、 Ar^{12} 、 Ar^{13} 及び Ar^{16} は、それぞれ置換基を有する若しくは有しないアリール基を示し、 Ar^8 と Ar^9 、 Ar^{10} と Ar^{12} 、 Ar^{13} と Ar^{16} は、たがいに同一でも異なってもよい。 Ar^{11} 、 Ar^{14} 及び Ar^{15} は、それぞれ置換基を有する若しくは有しないアリーレン基を示し、 Ar^{14} と Ar^{15} は、たがいに同一でも異なってもよい。）で表される電子伝達化合物が挙げられる。

【0099】これら一般式（V）～（VII）におけるアリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレン基、ピレン基などが挙げられる。また、アリーレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラニレン基、ペリレン基、ピレン基などが挙げられる。そして、これらへの置換基としては炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基またはシアノ基等が挙げられる。この電子伝達化合物は、薄膜形成性の良好なものが好ましく用いられる。

【0100】そして、これら電子伝達性化合物の具体例としては、下記のを挙げるることができる。

【0101】

【化24】

らの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウ

ムーカリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム、 Al/Li_2O 、 Al/LiO_2 、 Al/LiF 、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。この陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。

【0103】ここで、発光層からの発光を陰極から取り出す場合、陰極の発光に対する透過率は10%より大きくすることが好ましい。また、陰極としてのシート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましく、さらに、膜厚は通常10nm~1 μ m、好ましくは50~200nmである。

【0104】次に、本発明の有機EL素子を作製する方法については、上記の材料及び方法により陽極、発光層、必要に応じて正孔注入層、および必要に応じて電子注入層を形成し、最後に陰極を形成すればよい。また、陰極から陽極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

【0105】以下、透光性基板上に、陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例について説明する。

【0106】まず、適当な透光性基板上に、陽極材料からなる薄膜を1 μ m以下、好ましくは10~200nmの範囲の膜厚になるように、蒸着法あるいはスパッタリング法により形成し、陽極とする。次に、この陽極上に正孔注入層を設ける。正孔注入層の形成は、前述したように真空蒸着法、スパッタリング法、キャスト法、LB法等の方法により行うことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物(正孔注入層の材料)、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結晶構造等により異なるが、一般に蒸着源温度50~450 $^{\circ}C$ 、真空度 10^{-7} ~ 10^{-8} torr、蒸着速度0.01~50nm/秒、基板温度-50~300 $^{\circ}C$ 、膜厚5nm~5 μ mの範囲で適宜選択することが好ましい。

【0107】次に、この正孔注入層上に発光層を設ける。この発光層の形成も、所望の有機発光材料を用いて真空蒸着法、スパッタリング、スパッタリング法、キャスト法等の方法により、有機発光材料を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により発光層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物により異なるが、一般的に正孔注入層の形成と同様な条件範囲の中から選択することができる。

【0108】次に、この発光層上に電子注入層を設ける。この場合にも正孔注入層、発光層と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好まし

い。蒸着条件は正孔注入層、発光層と同様の条件範囲から選択することができる。

【0109】本発明のジスチルアアリーレン誘導体は、上記有機化合物層のいずれの層に含有させるかによって異なるが、真空蒸着法を用いる場合は他の材料との共蒸着をすることができる。またスパッタリング法を用いる場合は、他の材料と混合することによって含有させることができる。

【0110】そして、最後に陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。陰極は金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しかし、下地の有機物層を製膜時の損傷から守るためには真空蒸着法が好ましい。

【0111】以上の有機EL素子の作製は、一回の真空引きで、一貫して陽極から陰極まで作製することが好ましい。

【0112】この有機EL素子に直流電圧を印加する場合、陽極を+、陰極を-の極性にして、3~40Vの電圧を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加した場合には、陽極が+、陰極が-の極性になった時のみ均一な発光が観測される。この場合、印加する交流の波形は任意でよい。

【0113】

【実施例】次に、本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

実施例1(化合物A-1の合成)

アルゴン雰囲気下、無水テトラヒドロフラン(THF)溶液中6-(2,2-ジフェニルビニル)-2-プロモナフタリン13g(33ミリモル)とマグネシウム0.9g(38ミリモル)からグリニャール試薬を調整した。次いで、アルゴン雰囲気下、9,10-ジプロモアントラセン3.7g(11ミリモル)、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム0.3g(0.43ミリモル)を無水THF溶液(100ml)に溶かし、水素化ジイソブチルアルミニウムのトルエン溶液(1mol/L)を0.9mlを加えて室温で10分攪拌後、先に調整したグリニャール試薬を滴下して、10時間還流した。反応混合物をトルエンで希釈し、水、飽和食塩水で洗浄、硫化マグネシウムで乾燥、溶媒留去して得られた残渣をトルエンから再結晶して白色固体5.6g(収率65%)を得た。

【0114】このものについての元素分析値及びフィールド・ディソープション・マスペクトル(FD-MS)の測定結果は以下の通りである。

元素分析値(%) C; 94.32, H; 5.39
 $C_{62}H_{42}$ としての計算値(%) C; 94.62, H; 5.38
 FD-MS: m/z = 786 (M^+ , 100), $C_{62}H$

$_{42}$ として計算した分子量=786

【0115】実施例2 (化合物A-2の合成)

アルゴン雰囲気下、無水THF溶液中6-(2-フェニル2-p-ビフェニルビニル)-2-ブロモナフタリン15.2g (33ミリモル)とマグネシウム0.9g (38ミリモル)からグリニャール試薬を調整した。次いで、アルゴン雰囲気下、9,10-ジプロモアントラセン3.7g (11ミリモル)、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム0.3g (0.43ミリモル)を無水THF溶液(100ml)に溶かし、水素化ジイソブチルアルミニウムのトルエン溶液(1モル/L)を0.9mlを加えて室温で10分攪拌後、先に調整したグリニャール試薬を滴下して、10時間還流した。反応混合物をトルエンで希釈し、水、飽和食塩水で洗浄、硫化マグネシウムで乾燥、溶媒留去して得られた残渣をトルエンから再結晶して白色固体4.7g (収率46%)を得た。このものについての元素分析値及びFD-MSの測定結果は以下の通りである。

元素分析値(%) C; 94.30, H; 5.11

$C_{74}H_{50}$ としての計算値(%) C; 94.63, H; 5.37

FD-MS: $m/z = 938$ (M^+ , 100), $C_{74}H_{50}$ として計算した分子量=938

【0116】実施例3 (化合物A-3の合成)

アルゴン雰囲気下、無水THF溶液中6-(2,2-ジフェニルビニル)-2-ブロモナフタレン13g (33ミリモル)とマグネシウム0.9g (38ミリモル)からグリニャール試薬を調整した。次いで、アルゴン雰囲気下、9,9ジメチル-2,7-ジプロモフルオレン3.9g (11ミリモル)、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム0.3g (0.43ミリモル)を無水THF溶液(100ml)に溶かし、水素化ジイソブチルアルミニウムのトルエン溶液(1モル/L)を0.9mlを加えて室温で10分攪拌後、先に調整したグリニャール試薬を滴下して、10時間還流した。反応混合物をトルエンで希釈し、水、飽和食塩水で洗浄、硫化マグネシウムで乾燥、溶媒留去して得られた残渣をトルエンから再結晶して白色固体7.2g (収率82%)を得た。このものについての元素分析値及びFD-MSの測定結果は以下の通りである。

元素分析値(%) C; 93.89, H; 5.46

$C_{62}H_{42}$ としての計算値(%) C; 94.23, H; 5.77

FD-MS: $m/z = 802$ (M^+ , 100), $C_{62}H_{42}$ として計算した分子量=802

【0117】実施例4 (化合物A-4の合成)

アルゴン雰囲気下、無水THF溶液中2-ブロモナフタレン6.8g (33ミリモル)とマグネシウム0.9g (38ミリモル)からグリニャール試薬を調整した。次いで、アルゴン雰囲気下、10,10"-ジプロモ-

9,9'-ビスアントラセン5.6g (11ミリモル)、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム0.3g (0.43ミリモル)を無水THF溶液(100ml)に溶かし、水素化ジイソブチルアルミニウムのトルエン溶液(1モル/L)を0.9mlを加えて室温で10分攪拌後、先に調整したグリニャール試薬を滴下して、10時間還流した。反応混合物をトルエンで希釈し、水、飽和食塩水で洗浄、硫化マグネシウムで乾燥、溶媒留去して得られた残渣をトルエンから再結晶して白色固体4.9g (収率74%)を得た。このものについての元素分析値及びFD-MSの測定結果は以下の通りである。

元素分析値(%) C; 94.86, H; 4.66

$C_{48}H_{30}$ としての計算値(%) C; 95.02, H; 4.98

FD-MS: $m/z = 606$ (M^+ , 100), $C_{48}H_{30}$ として計算した分子量=606

【0118】実施例5 (化合物A-5の合成)

アルゴン雰囲気下、無水THF溶液中5-(2,2-ジフェニルビニル)-1-ブロモナフタレン13g (33ミリモル)とマグネシウム0.9g (38ミリモル)からグリニャール試薬を調整した。次いで、アルゴン雰囲気下、10,10"-ジプロモ-9,9'-ビスアントラセン5.6g (11ミリモル)、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム0.3g (0.43ミリモル)を無水THF溶液(100ml)に溶かし、水素化ジイソブチルアルミニウムのトルエン溶液(1モル/L)を0.9mlを加えて室温で10分攪拌後、先に調整したグリニャール試薬を滴下して、10時間還流した。反応混合物をトルエンで希釈し、水、飽和食塩水で洗浄、硫化マグネシウムで乾燥、溶媒留去して得られた残渣をトルエンから再結晶して白色固体5.8g (収率55%)を得た。このものについての元素分析値及びFD-MSの測定結果は以下の通りである。

元素分析値(%) C; 94.52, H; 5.30

$C_{76}H_{50}$ としての計算値(%) C; 94.77, H; 5.23

FD-MS: $m/z = 962$ (M^+ , 100), $C_{76}H_{50}$ として計算した分子量=962

【0119】実施例6 (化合物A-9の合成)

アルゴン雰囲気下、無水THF溶液中9-ブロモフェナントレン8.5g (33ミリモル)とマグネシウム0.9g (38ミリモル)からグリニャール試薬を調整した。次いで、アルゴン雰囲気下、10,10"-ジプロモ-9,9'-ビスアントラセン5.6g (11ミリモル)、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム0.3g (0.43ミリモル)を無水THF溶液(100ml)に溶かし、水素化ジイソブチルアルミニウムのトルエン溶液(1モル/L)を0.9mlを加えて室温で10分攪拌後、先に調整したグリニャール試薬を滴下

して、10時間還流した。反応混合物をトルエンで希釈し、水、飽和食塩水で洗浄、硫化マグネシウムで乾燥、溶媒留去して得られた残渣をトルエンから再結晶して白色固体6.9g(収率89%)を得た。このものについての元素分析値及びFD-MSの測定結果は以下の通りである。

元素分析値(%) C:95.17, H:5.66

C₅₆H₃₄としての計算値(%) C:95.15, H:5.85

FD-MS: m/z=706 (M⁺, 100), C₅₆H₃₄として計算した分子量=706

【0120】実施例7(有機EL素子の作製)

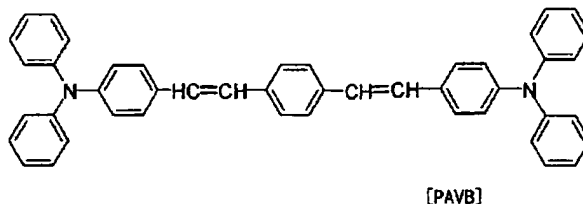
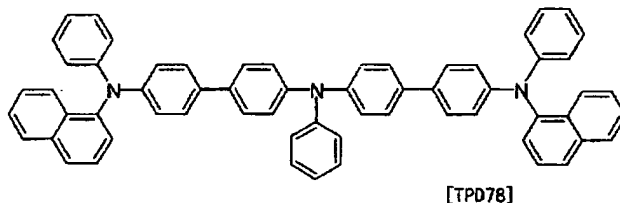
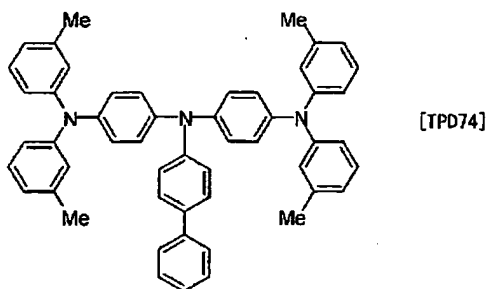
25mm×75mm×1.1mmサイズのガラス基板上に、膜厚100nmのインジウム・スズ酸化物膜の透明性アノードを設けた。このガラス基板を真空蒸着装置〔日本真空技術(株)製〕に入れ、約10⁻⁴Paに減圧した。これに、下記構造を有するTPD74を、蒸着速度0.2nm/秒で60nmの厚さに蒸着した。次いで、

下記構造を有するTPD78を、蒸着速度0.2nm/秒で20nmの厚さに蒸着した。次に、化合物(A-1)及び下記構造のPAVBを同時蒸着して40nmの厚さの発光層を形成した。この際の(A-1)の蒸着速度は0.4nm/秒であり、PAVBの蒸着速度は0.01nm/秒であった。さらに、トリス(8-キノリノール)アルミニウム(Alq)を蒸着速度0.2nm/秒で蒸着し、最後にアルミニウムとリチウムとを同時蒸着することにより、陰極を150nmの厚さで形成した。この際、アルミニウムの蒸着速度は1nm/秒であり、リチウムの蒸着速度は0.004nm/秒であった。なお、(A-1)は発光材料であり、PAVBは再結合サイト形成物質である。

【0121】得られた有機EL素子の性能を第1表に示す。

【0122】

【化25】



【0123】実施例8

実施例7において、化合物(A-1)の代わりに、化合物(A-2)を用いた以外は、実施例7と同様にして有機EL素子を作製した。このものの性能を第1表に示す。

実施例9

実施例7において、化合物(A-1)の代わりに、化合物(A-3)を用いた以外は、実施例7と同様にして有

機EL素子を作製した。このものの性能を第1表に示す。

実施例10

実施例7において、化合物(A-1)の代わりに、化合物(A-4)を用いた以外は、実施例7と同様にして有機EL素子を作製した。このものの性能を第1表に示す。

実施例11

実施例7において、化合物(A-1)の代わりに、化合物(A-5)を用いた以外は、実施例7と同様にして有機EL素子を作製した。このものの性能を第1表に示す。

実施例12

実施例7において、化合物(A-1)の代わりに、化合物(A-6)を用いた以外は、実施例7と同様にして有機EL素子を作製した。このものの性能を第1表に示す。

実施例13

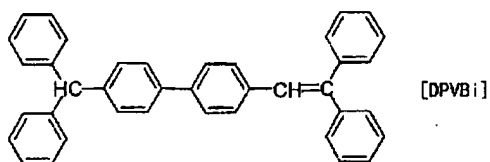
実施例7において、化合物(A-1)の代わりに、化合物(A-7)を用いた以外は、実施例7と同様にして有機EL素子を作製した。このものの性能を第1表に示す。

比較例1

実施例7において、化合物(A-1)の代わりに、

【0124】

【化26】



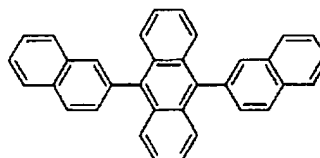
【0125】で示される構造の化合物を用いた以外は、実施例7と同様にして有機EL素子を作製した。このものの性能を第1表に示す。

比較例2

実施例7において、化合物(A-1)の代わりに、下記の化合物

【0126】

【化27】



【0127】を用いた以外は、実施例7と同様にして有機EL素子を作製した。このものの性能を第1表に示す。

【0128】

【表1】

第1表

	電圧 (V)	輝度 (nit)	発光色	効率 (lm/w)	輝度半減寿命 (hr)
実施例7	6.0	252	青緑	4.80	2600
実施例8	6.0	321	青緑	3.80	1500
実施例9	6.0	120	青緑	5.10	2700
実施例10	6.0	387	青緑	4.20	2500
実施例11	6.0	108	青緑	3.0	2100
実施例12	6.0	173	青緑	3.15	1700
実施例13	6.0	190	青緑	2.75	2500
比較例1	6.0	160	青緑	4.10	1000
比較例2	6.0	85	青緑	1.25	620

【0129】〔注〕輝度半減寿命は、窒素気流下に初期輝度500nitの定電流駆動を行い、輝度が250nitへと減衰するまでの時間を測定することにより求めた。第1表において、実施例7～13と比較例1及び2を比べて分かるように、本発明の有機化合物を発光材料として用いた場合、より優れた効率と寿命が得られる。

【0130】

【発明の効果】本発明の有機化合物は、有機EL素子の構成材料として有用であり、特に発光材料や再結合サイト形成物質として用いた場合、優れた効率と寿命が発揮される。

フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マ-ド (参考)
C 0 9 K 11/06	6 5 5	C 0 9 K 11/06	6 5 5
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B

Fターム(参考) 3K007 AB00 AB03 AB04 CA01 CA05
CB01 CB03 DA00 DB03 EB00
FA01
4H006 AA01 AA03 AB91 AB92 BJ50
BP30 BS30 BU48 FC54 FC56
TB04